

1/3,AB/2 351 15370804 \$6.37 US  
Derwent WPI  
(c) 2004 Thomson Derwent. All rights reserved.

015370804

WPI Acc No: 2003-431742/200341

XRAM Acc No: C03-114337

XRPX Acc No: N03-344562

Sensor element used for determining concentration of oxygen and/or nitrogen oxides in Internal Combustion engine exhaust gases has

first electrode arranged in inner gas chamber in same layer surface of sensor element

Patent Assignee: BOSCH GMBH ROBERT (BOSC ); KETTERLE K (KETT-I); SCHUMANN

B (SCHU-I)

Inventor: KETTERLE K; SCHUMANN B

Number of Countries: 003 Number of Patents: 003

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
DE 10149739	A1	20030410	DE 1049739	A	20011009	200341 B
JP 2003121412	A	20030423	JP 2002293811	A	20021007	200341
US 20030075441	A1	20030424	US 2002267541	A	20021009	200341

Priority Applications (No Type Date): DE 1049739 A 20011009

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
-----------	------	--------	----------	--------------

DE 10149739	A1	7	G01N-027/407	
-------------	----	---	--------------	--

JP 2003121412	A	6	G01N-027/416	
---------------	---	---	--------------	--

US 20030075441	A1		G01N-027/26	
----------------	----	--	-------------	--

Abstract (Basic): DE 10149739 A1

Abstract (Basic):

NOVELTY - Sensor element comprises an electrochemical cell consisting of a electrodes. A first electrode (22) is arranged in an inner gas chamber (17) in the same layer surface (11b, 11d) of the sensor element. The second electrode (20) of a reference electrode (28)

is arranged in a further inner gas chamber (13, 19).

DETAILED DESCRIPTION - Preferred Features: The electrochemical cell

is an electrochemical pump cell by which the oxygen partial pressure on

the second electrode can be adjusted by oxygen transfer between the two

electrodes. The inner gas chamber (17), in which the first electrode is

arranged, is connected to the gas mixture via a diffusion resistor (32). The inner gas chamber (17) is filled with a porous material and

is in contact with a reference gas atmosphere.

USE - Used for determining the concentration of oxygen and/or

nitrogen oxides in I.C. engine exhaust gases, and for determining hydrocarbons, methane and ammonia..

ADVANTAGE - The element has a simple structure.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The drawing shows a longitudinal section through the sensor element.

layer surface (11b, 11d)

inner gas chamber (13, 19)

inner gas chamber (17)

first electrode (22)

reference electrode (28)

diffusion resistor (32)

pp; 7 DwgNo 1/6

⑯ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑯ ⑫ Offenlegungsschrift  
⑯ ⑩ DE 101 49 739 A 1

⑮ Int. Cl. 7:  
G 01 N 27/407

DE 101 49 739 A 1

⑯ ⑯ Aktenzeichen: 101 49 739.3  
⑯ ⑯ Anmeldetag: 9. 10. 2001  
⑯ ⑯ Offenlegungstag: 10. 4. 2003

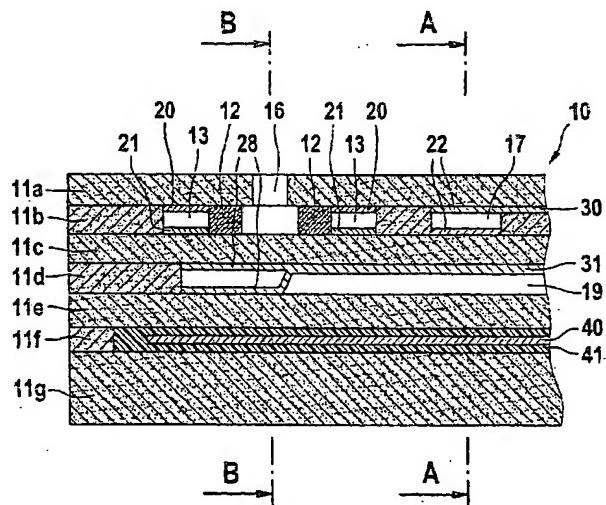
⑯ Anmelder:  
Robert Bosch GmbH, 70469 Stuttgart, DE

⑯ Erfinder:  
Ketterle, Karl-Michael, Dr., 71636 Ludwigsburg, DE;  
Schumann, Bernd, Dr., 71277 Rutesheim, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

⑯ Sensorelement eines Gassensors

- ⑯ Es wird ein Sensorelement auf Festelektrolytbasis eines Gassensors zur Bestimmung einer Gaskomponente in einem Gasgemisch beschrieben, insbesondere zur Bestimmung der Konzentration von Sauerstoff und/oder Stickoxiden in Abgasen von Verbrennungsmotoren. Das Sensorelement weist eine elektrochemische Zelle auf, die eine erste und eine zweite Elektrode (20, 22) umfaßt, wobei beide Elektroden (20, 22) in inneren Gasräumen (13, 17) des Sensorelements angeordnet sind. Der innere Gasraum (17), in dem die erste Elektrode (22) angeordnet ist, befindet sich weitgehend in derselben Schichtebene (11b, 11d) des Sensorlements wie mindestens ein weiterer innerer Gasraum (13, 19) des Sensorelements, in dem sich die zweite Elektrode (20) oder eine Referenzelektrode (28) befinden.



DE 101 49 739 A 1

## Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Sensorelement eines Gassensors zur Bestimmung der Konzentration einer Gaskomponente in einem Gasgemisch nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

## Stand der Technik

[0002] In der Analytik der Abgase von Verbrennungsmotoren kommen schon seit langerer Zeit Gassensoren auf Festelektrolytbasis zum Einsatz, mit deren Hilfe elektrochemisch die Konzentration einzelner Gaskomponenten bestimmt werden kann. Die Funktionsweise einiger dieser Gassensoren beruht darauf, dass die Sauerstoffkonzentration innerhalb eines in den Gassensor integrierten Sensorelements auf einen konstant niedrigen Wert eingestellt wird. Dies geschieht durch einen elektrochemischen Pumpprozess, bei dem zwischen den Elektroden einer elektrochemischen Pumpzelle ein Sauerstofftransfer stattfindet. Eine der Elektroden der Pumpzelle ist dabei auf der dem Abgas ausgesetzten Außenfläche des Sensorelements angeordnet. Diese äußere Pumpelektrode wird zwar häufig mit einer porösen Schutzschicht versehen, sie ist jedoch trotzdem den korrosiven Einflüssen der heißen Verbrennungsabgase ausgesetzt.

[0003] Aus der US 4,902,400 ist ein Sensorelement bekannt, bei dem die Sauerstoffkonzentration innerhalb des Sensorelements auf einen konstanten Wert eingestellt wird, ohne dass das Sensorelement eine auf der Außenseite des Sensorelements aufgebrachte äußere Pumpelektrode aufweist. Stattdessen umfasst das Sensorelement zwei zusätzliche Festelektrolytschichten und einen zusätzlichen Referenzgaskanal, der durch eine Öffnung mit der Umgebungsluft in Kontakt steht und in dem die äußere Pumpelektrode angeordnet ist. Dieser Aufbau des Sensorelements ist jedoch aufwendig und somit kostenintensiv.

[0004] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Sensorelement zur Verfügung zu stellen, dessen äußere Pumpelektrode nicht direkt dem zu untersuchenden Gasgemisch ausgesetzt ist und das gleichzeitig möglichst einfach aufgebaut ist.

## Vorteile der Erfindung

[0005] Das erfindungsgemäße Sensorelement mit den kennzeichnenden Merkmalen des Anspruchs 1 zeichnet sich durch seinen vergleichsweise einfachen Aufbau aus und dadurch, dass alle Pumpelektroden in inneren Gasräumen des Sensorelements angeordnet sind. Dies ermöglicht eine kostengünstige Herstellung des Sensorelementes bei gleichzeitig hoher Standzeit der zum Einsatz kommenden Pumpelektroden. Der einfache Aufbau wird erreicht, in dem die äußere Pumpelektrode in einem separaten inneren Gasraum des Sensorelementes angeordnet wird, der in eine Schichtebene des Sensorelementes integriert ist, in dem sich bereits ein weiterer innerer Gasraum des Sensorelementes oder ein Referenzgaskanal befindet.

[0006] Durch die in den Unteransprüchen aufgeführten Maßnahmen sind vorteilhafte Weiterbildungen und Verbesserungen des im Hauptanspruch angegebenen Sensorelementes möglich. So kann bspw. der innere Gasraum, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, mit einer Referenzgasatmosphäre in Kontakt stehen und somit jeglicher Kontakt mit der korrosiven Gasgemischatmosphäre vermieden werden. Eine weitere, besonders vorteilhafte Ausführungsform besteht darin, dass der innere Gasraum, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, über eine poröse Elektro-

denzuleitung mit der Umgebungsluft in Kontakt steht. Dies ermöglicht eine günstige Geometrie des inneren Gasraums, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, bei gleichzeitig ausreichender Belüftung des inneren Gasraums.

5

## Zeichnung

[0007] Fig. 1 zeigt einen Längsschnitt eines Sensorelements zur Bestimmung des Sauerstoffgehaltes eines Gasgemisches gemäß einem ersten Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung. Bei diesem ist der innere Gasraum, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, in dieselbe Schichtebene eingearbeitet wie ein weiterer, mit dem zu untersuchenden Gasgemisch in Kontakt stehender innerer Gasraum. In Fig. 2 ist ein Querschnitt durch das in Fig. 1 dargestellte Sensorelement entlang der Linie A-A abgebildet und in Fig. 3 ein Querschnitt durch das in Fig. 1 abgebildete Sensorelement entlang der Linie B-B. Fig. 4 zeigt einen Längsschnitt gemäß einem weiteren Ausführungsbeispiel, bei dem der innere Gasraum, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, in dieselbe Schichtebene des Sensorelementes eingearbeitet ist wie ein separater Referenzgaskanal.

[0008] In Fig. 5 und Fig. 6 sind Längsschnitte durch Sensorelemente beispielweise zur Bestimmung des Stickoxidgehaltes eines zu untersuchenden Gasgemisches dargestellt, wobei der innere Gasraum, in dem sich die äußere Pumpelektrode befindet, im einen Fall in dieselbe Schichtebene eingearbeitet ist wie ein weiterer, mit dem zu untersuchenden Gasgemisch in Kontakt stehender innerer Gasraum, und im anderen Fall in die Schichtebene eines Referenzgaskanals.

35 [0009] Fig. 1 zeigt einen prinzipiellen Aufbau einer ersten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung. Mit 10 ist ein planares Sensorelement eines elektrochemischen Gassensors bezeichnet, das beispielsweise eine Mehrzahl von sauerstoffionenleitenden Festelektrolytschichten 11a, 11b, 11c, 40 11d, 11e, 11f und 11g aufweist. Die Festelektrolytschichten 11a-11g werden dabei als keramische Folien ausgeführt und bilden einen planaren keramischen Körper. Sie bestehen aus einem sauerstoffionenleitenden Festelektrolytmaterial, wie beispielsweise mit Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> stabilisiertem oder teilstabilisiertem ZrO<sub>2</sub>.

[0010] Die integrierte Form des planaren keramischen Körpers des Sensorelements 10 wird durch Zusammenlaminieren der mit Funktionsschichten bedruckten keramischen Folien und anschließendem Sintern der laminierten Struktur in an sich bekannter Weise hergestellt.

[0011] Das Sensorelement 10 beinhaltet zwei Gasräume, einen inneren Gasraum 13 und einen Referenzgaskanal 19. Der Referenzgaskanal 19 ist an einem Ende offen und steht in Kontakt mit einer Referenzgasatmosphäre. Der innere Gasraum 13 ist beispielsweise kreisringförmig ausgeführt und steht über eine Öffnung 16 mit der Gasgemischatmosphäre in Verbindung. Die Öffnung 16 ist vorzugsweise in der Festelektrolytschicht 11a senkrecht zur Oberfläche des Sensorelements 10 angebracht.

[0012] Im inneren Gasraum 13 befindet sich eine innere Pumpelektrode 20, die angepasst an die kreisringförmige Geometrie des inneren Gasraums 13 ebenfalls kreisringförmig ausgeführt ist. Gegenüber der inneren Pumpelektrode 20 befindet sich im inneren Gasraum 13 eine Meßelektrode 21, die mit der inneren Pumpelektrode 20 kurzgeschlossen werden kann. Auch diese ist beispielsweise kreisringförmig ausgeführt. Die dazugehörige Referenzelektrode 28 ist im Referenzgaskanal 19 angeordnet. Die Referenzelektrode 28

kann alternativ auch in doppelter Ausführung ausgebildet sein und ist über eine Leiterbahn 31 kontaktiert. Mess- und Referenzelektrode 21, 28 bilden zusammen eine Nernst- bzw. Konzentrationszelle.

[0013] Innerhalb des Messgasraums 13 ist in Diffusionsrichtung des Messgases der inneren Pumpelektrode 20 und der Messelektrode 21 eine poröse Diffusionsbarriere 12 vorgelagert. Die poröse Diffusionsbarriere 12 bildet einen Diffusionswiderstand bezüglich des zu den Elektroden 20, 21 diffundierenden Gases aus.

[0014] Des weiteren ist ein Widerstandsheizer 40 beispielsweise in die Festelektrolytschicht 11f integriert und in eine elektrische Isolation 41, beispielsweise aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , eingebettet. Mittels des Widerstandsheizers 40 wird das Sensorelement 10 auf die entsprechende Betriebstemperatur von beispielsweise  $750^\circ\text{C}$  erhitzt.

[0015] Die innere Pumpelektrode 20 bildet zusammen mit einer äußeren Pumpelektrode 22, die durch eine Leiterbahn 30 kontaktiert ist, eine Pumpzelle. Die äußere Pumpelektrode 22 ist in einem zweiten inneren Gasraum 17 angeordnet. An die Pumpelektroden 20, 22 wird eine Pumpspannung angelegt, so daß zwischen innerer und äußerer Pumpelektrode 20, 22 ein Sauerstofftransfer stattfindet. Durch den Sauerstofftransfer wird im inneren Gasraum 13 ein konstanter Sauerstoffpartialdruck eingestellt, wobei der zweite innere Gasraum 17 als Sauerstoffspeicher dient. Die an die Pumpzelle 20, 22 angelegte Pumpspannung wird so variiert, daß an der durch die Messelektrode 21 und die Referenzelektrode 28 gebildeten Konzentrationszelle eine weitgehend konstante Potentialdifferenz beispielsweise von  $450\text{ mV}$  anliegt. Als ein der Sauerstoffkonzentration im Abgas proportionales Messsignal wird der zwischen den Elektroden 20, 22 der Pumpzelle fließende Pumpstrom herangezogen.

[0016] Die äußere Pumpelektrode 22 befindet sich im zweiten inneren Gasraum 17, der vorzugsweise in derselben Schichtebene 11b angeordnet ist wie der innere Gasraum 13, und kann alternativ auch in doppelter Ausführung vorgesehen sein. Um einen möglichen Überdruck im zweiten inneren Gasraum 17 zu vermeiden, kann dieser, wie in Fig. 2 dargestellt, über einen Diffusionswiderstand in Form einer weiteren Diffusionsbarriere 32 in Kontakt zu dem das Sensorelement umgebenden Gasgemisch stehen. Die Diffusionsbarriere 32 ist dabei in ihrer Porosität so ausgelegt, daß das Eindringen des Gasgemisches stark erschwert wird und die äußere Pumpelektrode 22 vor einer Schädigung durch aggressive Gasbestandteile des Gasgemisches wirksam geschützt ist. Dieser Effekt kann verstärkt werden, indem der zweite innere Gasraum 17 mit porösem keramischem Material zumindest teilweise ausgefüllt wird.

[0017] Eine weitere Alternative, einen möglichen Überdruck im zweiten inneren Gasraum 17 zu vermeiden, besteht darin, die Zuleitung 30 der äußeren Pumpelektrode 22 porös auszustalten, so daß auf diesem Wege ein Teil des im zweiten inneren Gasraum 17 vorhandenen Gasgemisches Wege entweichen kann.

[0018] Um zu gewährleisten, daß an den Elektroden eine Einstellung des thermodynamischen Gleichgewichts der Gasgemischkomponenten erfolgt, bestehen alle verwendeten Elektroden aus einem katalytisch aktiven Material, wie beispielsweise Platin, wobei das Elektrodenmaterial für alle Elektroden in an sich bekannter Weise als Cermet eingesetzt wird, um mit den keramischen Folien zu versintern.

[0019] In Fig. 3 ist ein Querschnitt durch ein in Fig. 1 dargestelltes Sensorelement entlang der Schnittebene B-B gemäß einem zweiten Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung abgebildet, bei dem der zweite innere Gasraum 17 in die Schichtebene 11d eingearbeitet ist, in der sich auch der Referenzgaskanal 19 befindet. Der zweite innere Gas-

raum 17 ist parallel zum Referenzgaskanal 19 ausgerichtet und wie dieser steht er im Kontakt zu einer Referenzgasatmosphäre. Diese Ausführung entspricht einem in seiner Längsrichtung unterteilten doppelten Referenzgaskanal.

[0020] Fig. 4 zeigt ein Sensorelement gemäß einem dritten Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung als Variante des in Fig. 3 abgebildeten Sensorelements.

[0021] Der zweite innere Gasraum 17, der die äußere Pumpelektrode 22 beinhaltet, ist in der Schichtebene 11d, in der sich der Referenzgaskanal 19 befindet, angeordnet. Dabei ist der zweite innere Gasraum 17 nicht in Form eines separaten Referenzgaskanals ausgestaltet, sondern als Gasraum ohne direkten Kontakt zu einer Referenzgasatmosphäre. Um einen möglicherweise auftretenden Überdruck während des Betriebs des Sensorelements zu vermeiden kann der zweite innere Gasraum 17, wie bereits bei dem in Fig. 2 dargestellten Sensorelement beschrieben, über eine weitere Diffusionsbarriere oder eine poröse Zuleitung der Elektrode 22 entlüftet werden.

[0022] Während in den Fig. 1 bis 4 exemplarisch Sensorelemente zur Bestimmung des Sauerstoffgehaltes eines Gasgemisches beschrieben und dargestellt sind, sind in den Fig. 5 und 6 Sensorelemente abgebildet, die beispielsweise der Bestimmung von Stickoxiden dienen.

[0023] Das in Fig. 5 abgebildete Sensorelement gemäß einem vierten Ausführungsbeispiel weist einen weiteren zweiten inneren Gasraum 15 auf, der über eine zweite Diffusionsbarriere 14 in Kontakt mit dem hier nicht kreisringförmig angelegten inneren Gasraum 13 steht.

[0024] Im weiteren inneren Gasraum 15 befindet sich eine weitere innere Elektrode 24, die zusammen mit der äußeren Elektrode 22 oder der Referenzelektrode 28 eine zweite Pumpzelle bildet. Diese Pumpzelle dient der weiteren Verringerung des Sauerstoffgehaltes des aus dem ersten inneren Gasraum 13 eindiffundierenden Gasgemisches. Im weiteren inneren Gasraum 15 ist darüber hinaus eine dritte innere Pumpelektrode 26 vorgesehen, die zusammen mit der Referenzelektrode 28 eine dritte elektrochemische Pumpzelle bildet. Die dritte Pumpzelle 26, 28 dient dem Nachweis des zu bestimmenden Gases, wobei das zu bestimmende Gas an der Oberfläche der inneren Pumpelektrode 26 zersetzt und der freiwerdende bzw. der nach der Reaktion verbliebene Sauerstoff abgepumpt wird. Als Maß für die Konzentration des zu bestimmenden Gases wird der zwischen den Elektroden 26, 28 fließende Pumpstrom herangezogen.

[0025] Um zu gewährleisten, daß an den Elektroden 20, 21, 24 keine Zersetzung des zu bestimmenden Gases auftritt, werden die Elektroden 20, 21, 24 des in Fig. 5 abgebildeten Sensorelements aus einem katalytisch inaktiven Material gefertigt. Dies kann beispielsweise Gold oder eine Gold/Platin-Legierung sein. Die Elektrode 26 ist dagegen katalytisch aktiv ausgeführt und besteht beispielsweise aus Rhodium oder einer Platin/Rhodium-Legierung.

[0026] Der zweite innere Gasraum 17 befindet sich wie bei dem in Fig. 5 dargestellten Sensorelement in der Schichtebene 11b, die darüber hinaus die inneren Gasräume 13, 15 umfaßt. Die äußere Pumpelektrode 22 ist im inneren Gasraum 17 angeordnet und kann analog zu dem in Fig. 1 abgebildeten Sensorelement über eine weitere poröse Diffusionsbarriere in Kontakt mit dem Gasgemisch stehen. Auch hier ist eine alternative Entlüftung des zweiten inneren Gasraums 17 über eine porös ausgeführte Zuleitung 30 der Elektrode 22 möglich.

[0027] In Fig. 6 ist eine Variante des in Fig. 5 dargestellten Sensorelements abgebildet, bei dem der zweite innere Gasraum 17 anstatt in der Festelektrolytschicht 11b in die Schicht 11d integriert ist. Die Entlüftung des zweiten inneren Gasraums 17 kann auch hier über eine weitere Diffusi-

onsbarriere bzw. über eine poröse Zuleitung der Elektrode 22 erfolgen. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, den zweiten inneren Gasraum 17 analog zu dem in Fig. 3 dargestellten Ausführungsbeispiel als Teil eines längs unterteilten Referenzgaskanals auszuführen.

5

[0028] Die vorliegende Erfindung ist nicht auf die in den Figuren dargestellten Ausführungsbeispiele beschränkt, sondern es ist eine Vielzahl weiterer Anwendungsmöglichkeiten denkbar. Dies gilt beispielsweise für elektrochemische Gassensoren zur Bestimmung von Kohlenwasserstoffen, Wasserstoff, Methan, Ammoniak etc., sofern sie eine elektrochemische Pumpzelle aufweisen.

10

15

## Patentansprüche

1. Sensorelement auf Festelektrolytbasis eines Gas-sensors zur Bestimmung einer Gaskomponente in ei-nem Gasgemisch, insbesondere zur Bestimmung der Konzentration von Sauerstoff und/oder Stickoxiden in Abgasen von Verbrennungsmotoren, mit einer elektro-chemischen Zelle, die eine erste und eine zweite Elek-trode umfaßt, wobei beide Elektroden in inneren Gas-räumen des Sensorelements angeordnet sind, **dadurch gekennzeichnet**, daß sich der innere Gasraum (17), in dem die erste Elektrode (22) angeordnet ist, weitge-hend in derselben Schichtebene (11b, 11d) des Sensor-elements befindet wie mindestens ein weiterer innerer Gasraum (13, 19) des Sensorelements, in dem sich die zweite Elektrode (20) oder eine Referenzelektrode (28) befinden.
2. Sensorelement nach Anspruch 1, dadurch gekenn-zeichnet, daß die elektrochemische Zelle eine elektro-chemische Pumpzelle ist, mittels der der Sauerstoffpar-tialdruck an der zweiten Elektrode (20) durch Sauer-stofftransfer zwischen erster und zweiter Elektrode (20, 22) einstellbar ist.
3. Sensorelement nach Anspruch 1 oder 2, dadurch ge-kennzeichnet, daß der innere Gasraum (17), in dem die erste Elektrode (22) angeordnet ist, über einen Diffusi-onswiderstand (32) mit dem Gasgemisch verbunden ist.
4. Sensorelement nach Anspruch 3, dadurch gekenn-zeichnet, daß der innere Gasraum (17), in dem sich die erste Elektrode (22) befindet, überwiegend mit einem porösen Material ausgefüllt ist.
5. Sensorelement nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der innere Gasraum (17), in dem sich die erste Elektrode (22) befindet, mit einer Referenzgasatmosphäre in Kontakt steht.
6. Sensorelement nach einem der vorhergehenden An-sprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der innere Gas-raum (17), in dem sich die erste Elektrode (22) befin-det, als in Längsrichtung unterteilter Referenzgaskanal ausgeführt ist, wobei in dessen einem Teil die erste Elektrode (22) und in dessen anderem Teil eine Refe-renzelektrode (28) angeordnet ist.
7. Sensorelement nach einem der vorhergehenden An-sprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Zulitigung (30) zur elektrischen Kontaktierung der ersten Elek-trode (22) porös ausgeführt ist.

20

25

30

35

40

45

50

55

60

---

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

Fig. 1

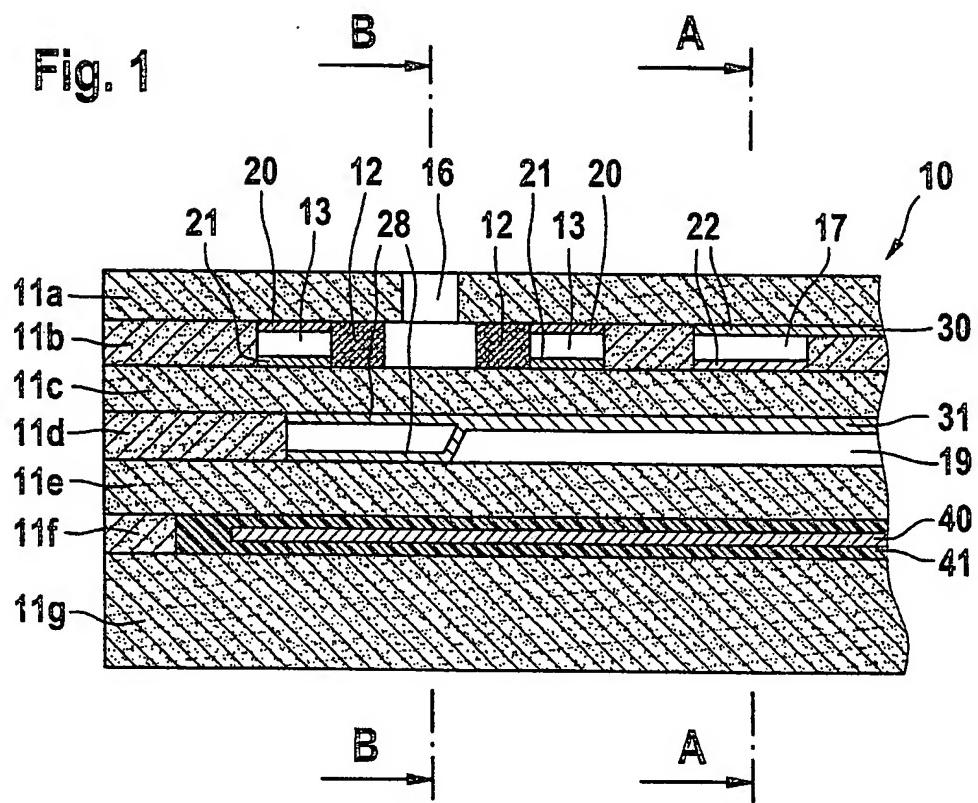


Fig. 2

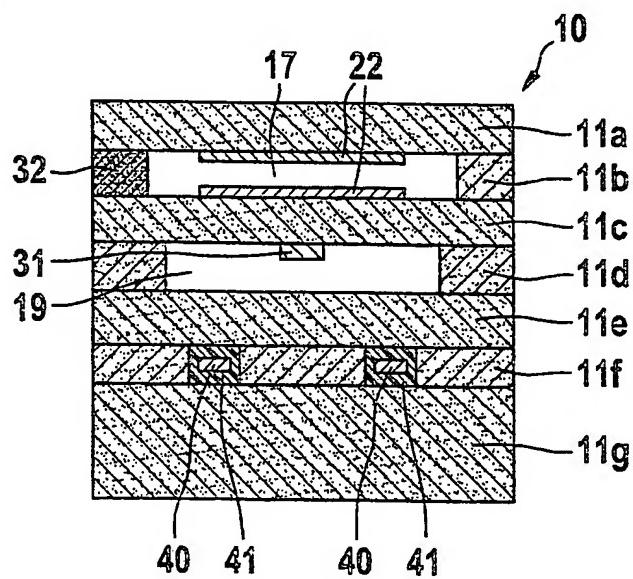


Fig. 3

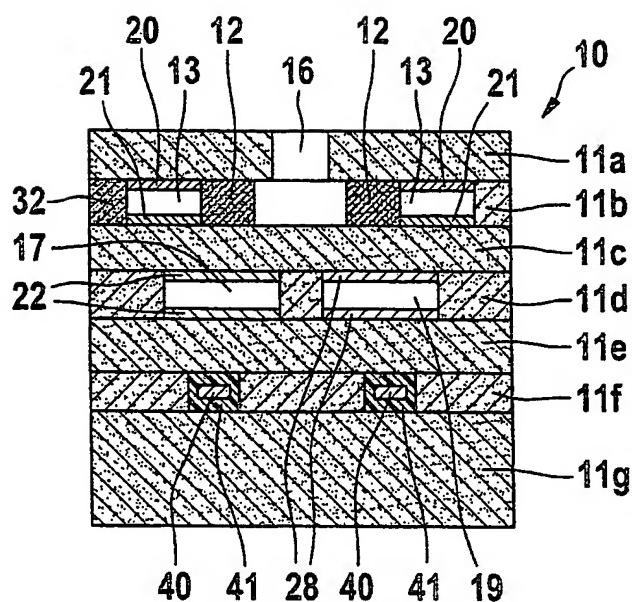
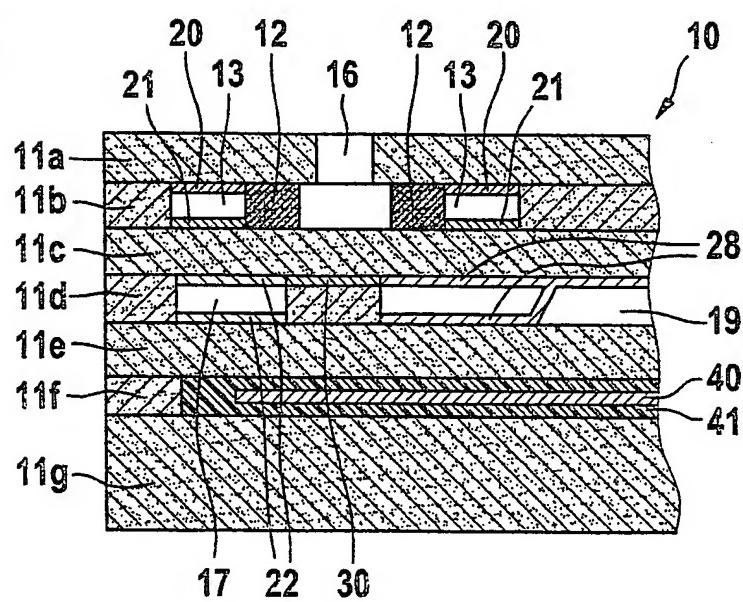
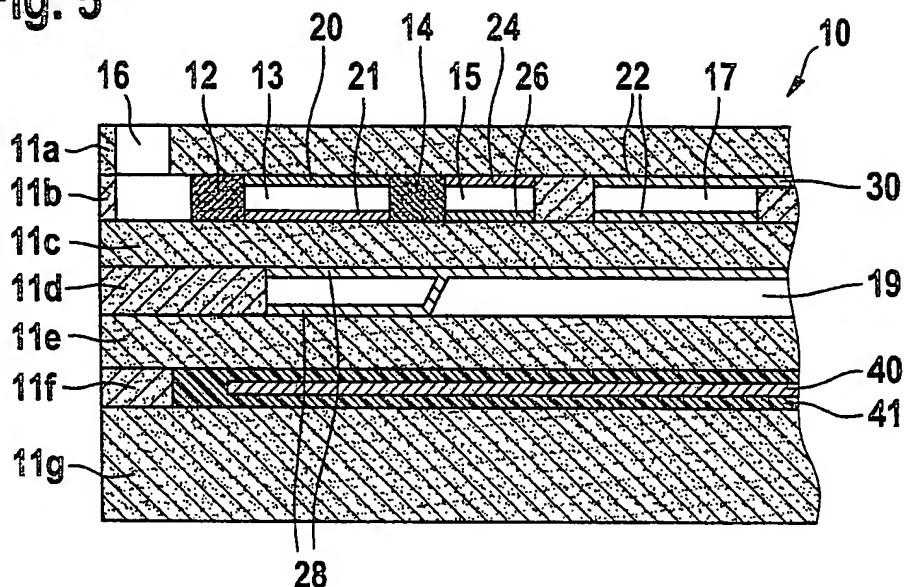


Fig. 4



**Fig. 5****Fig. 6**